

电引发脉冲氧碘化学激光器的增益

陈丽吟

(中国科学院力学研究所, 北京 100080)

提要 本文对脉冲氧碘化学激光器的增益性能进行了理论估算。碘原子由 CH_3I 电离产生。研究了各种压力条件下成份比和 CH_3I 离解度对增益系数的影响。

关键词 化学激光, 电引发, 化学非平衡, CH_3I

Gain characteristics of a pulsed oxygen-iodine chemical laser initiated by electrical discharge

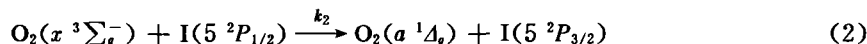
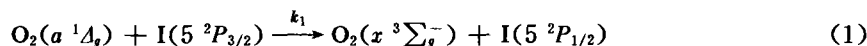
Chen Linyin

(Institute of Mechanics, Academia Sinica, Beijing 100080)

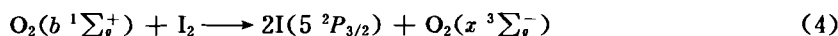
Abstract The gain characteristics of a pulsed oxygen-iodine chemical laser has been studied theoretically. The necessary iodine atom is initiated by electrolytic dissociation of CH_3I from low energy electrons. The influences of pressure, composition and the dissociation degree of CH_3I on gain are investigated in detail.

Key words chemical laser, electrical discharge, chemical non-equilibrium, CH_3I

氧碘化学激光器因波长短(1.315 μm),高比功率、高效率、易放大、无毒、价廉等优点而深受重视。近年来又鉴于它应用于热核聚变的可能前景,促进了大能量周期运转的脉冲氧碘化学激光器迅速发展^[1]。它的核心反应是



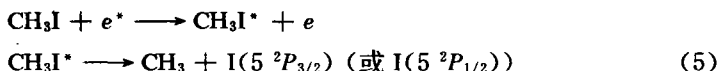
反应(1)、(2)互为正反过程,速率系数都很大, $T = 300\text{ K}$, $k_1 = 7.7 \times 10^{-11} \text{ cm}^3/(\text{s} \cdot \text{molecule})$, $k_2 = 2.6 \times 10^{11} \text{ cm}^3/(\text{s} \cdot \text{molecule})$, $\nu = 7605 \text{ cm}^{-1}$, h 是 Planck 常数。(1)~(3)反复循环,把 $\text{O}_2(a^1\Delta_g)$ 能量源源不断传给 $\text{I}(5^2P_{1/2})$,继而转化为辐射能。碘原子的来源是多途径的,一般连续氧碘激光器用碘分子直接引发。在传输过程中 $\text{O}_2(a^1\Delta_g)$ 自猝灭反应产生了 $\text{O}_2(b^1\Sigma_g^+)$,而



I_2 是 $\text{I}(5^2P_{1/2})$ 和 $\text{O}_2(b^1\Sigma_g^+)$ 的高效猝灭剂,所以 I_2 的浓度不能高,一般报道 $[\text{O}_2(a^1\Delta_g)]/[\text{I}_2]$

收稿日期:1992年8月27日。

$\approx 30 \sim 50^{[1]}$, 从而决定了氧碘激光器的低增益。脉冲运转的氧碘激光器有许多是用光解碘的卤化物得到碘原子的。最近《中国激光》杂志报道了放电引发的 $O_2(a^1A_g) - CH_3I - N_2$ 体系氧碘化学激光器^[2], 用低能电子使 CH_3I 离解成 $I(5^2P_{3/2})$ 和 $I(5^2P_{1/2})$, 即



代替方程(4)。这过程不用碘分子, 避免了 I_2 对 $I(5^2P_{1/2})$ 的快速碰撞消激发作用。据报道^[2]电引发效率比光解法高出 350 倍, 并测出了激光能量和脉冲宽度。

本文在较宽范围的运转条件下从理论上估算这种类型激光器的增益, 以此摸索它的潜力和影响增益系数的因素, 寻找可用的规律性结果*。

由化学发生器产生的 O_2^+ 和 O_2 混合气流(忽略水含量)与 N_2 和 RI 气流在混合室均匀混合后注入光腔。对光腔进行脉冲放电使 RI 离解为 R, I 和 I^* 。由于反应(1)~(3)快速进行, 腔中因受激发射输出 $\lambda = 1.315 \mu m$ 碘激光。假定激活介质混合物在出光之前已形成(因放电时间很短 $\ll 10^{-7} s$)。由于化学反应、碰撞弛豫和原子复合、离解诸动力学过程的发展, 光腔共有十种组元: $O_2^+, O_2, O_2^*, I^*, I, I_2, RI, R, R_2$ 和 N_2 ^[4]。

I^* 和 I 浓度的大小取决于 RI 的电离程度, 碘分子初浓度 $[I_2]_0 = 0$, 光腔内部 $[I_2]$ 来源于碘原子 I 的再度复合过程(相对较慢), 而激活介质混合物中 I 的浓度又小, 所以 $[I_2]$ 也很小。因目前还缺少电子对 RI 电离的电子能量分布函数和电离速率系数对 E/N 的关系数据, 无法直接从给定初始条件估算电离度。为使运算顺利进行, 事先假定一序列电离度: $DIA = ([I] + [I^*])/[RI]$, 只要给定 $[I^*]/[I]$, $[I^*]/[O_2^*]$ 可以推出。

计算初始条件为: $T_0 = 293 K$, 气流速度 $u = 30 m/s$; 放电时间 $< 0.1 \mu s$; 进入光腔的初始成份: $[O_2^*]:[O_2]:[RI]:[N_2] = 1:1:2:6$; DIA 从 $0.0025 \sim 0.02$; $[I^*]/[I]$ 从 $0 \rightarrow \infty$, 压力从 $0.133 \sim 13.3 kPa$ 。

基本方程

(1) 粒子数方程组

$$\frac{dN_i}{dt} = \left(\frac{dN_i}{dt} \right)_{\text{生成组元 } i} - \left(\frac{dN_i}{dt} \right)_{\text{组元 } i \text{ 消失}} + N_T \frac{\delta q I_A}{h\nu} + \delta A_{21} N_1^*(I) \quad i = 1, 2, \dots, 9 \quad (I)$$

因为 N_2 为惰性气体, 不参与化学反应, 无粒子数变化。当组元 i 为 I^* , $\delta = -1$; i 为 I , $\delta = +1$; 其他组元, $\delta = 0$ 。

(2) 流动守恒方程组

$$\frac{dT}{dt} = \frac{N_0}{N_T(\sum_i \psi_i C_{pi})} \left\{ \frac{WE}{HW} + \sum_i \left[\left(\frac{h_i - C_{pi} T}{N_0} \right) \frac{dN_i}{dt} \right] - \frac{g I_A}{HW} \times 10^{-7} - mu \left(\frac{du}{dt} \right) \times 10^{-7} / HW \right\} \quad (I-1)$$

$$\frac{du}{dt} = \left[\left(\frac{R}{M} \right) \cdot u \cdot \frac{dT}{dt} \right] / [(R/M) \cdot T - u^2] \quad (I-2)$$

$$\frac{d\rho}{dt} = - \frac{\rho \cdot (R/M) \cdot (dT/dt)}{(R/M) \cdot T - u^2} \quad (I-3)$$

$$P = N_T k T \quad (I-4)$$

$$N_T = \sum_{i=1}^{10} N_i \quad (I-5)$$

* 下文令: $CH_3I, I(5^2P_{3/2}), I(5^2P_{1/2})$ 用 RI, I, I^* 代替; $O_2(x^3\Sigma_g^-), O_2(a^1A_g), O_2(b^1\Sigma_g^+)$ 用 O_2, O_2^*, O_2^+ 代替。

Ⅱ 式中, ψ_i, C_{pi}, h_i, N_i 分别代表第 i 种组元的分子分数、定压热容量、生成热和单位体积分子数。 M, g, I_A 是混合物分子量、增益和光强。 m 是单位体积分子质量, N_0, R, A_{21} 是阿佛加德罗数、气体常数和从 I^* 到 I 的自发辐射系数。 WE 是放电功率, $HW = 4.1868$, 为热功当量。本文不考虑激光输出, $I_A = 0$ 。 N_T 为单位体积分子总数, 这里 $i = 1, 2, \dots, 10$ 。 $i = 10$, 代表 N_2 组元。

将方程组 I 和 II 耦合, 用 Runge Kutta 法在计算机上联立求解, 得出各时刻组元浓度 N_i , T, P, u, ρ , 和 N_T 诸物理量。并将 N_{I^*} 和 N_I 代入增益公式求解小信号增益。

在谱线中心, 增益系数定义为

$$g = \frac{\lambda^2 A_{21}}{4\pi \Delta\nu_D} (\ln 2/\pi)^{1/2} (N_{I^*} - N_I/2) \cdot V(a) \quad (\text{III} - 1)$$

式中 $\Delta\nu_D$ 为 Doppler 全宽度, $a = \sqrt{\ln 2} (\Delta\nu_c/\Delta\nu_D)$, $\Delta\nu_c$ 为碰撞全宽度。

$$V(a) = \exp(a^2) [1 - \operatorname{erf}(a)] \quad (\text{III} - 2)$$

$$\operatorname{erf}(a) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^a \exp(-x^2) dx \quad (\text{III} - 3)$$

$\operatorname{erf}(a)$ 为误差函数。由于研究的压力范围较宽, 增益公式中同时考虑 Doppler 和碰撞两种展宽因素。不同压力范围有不同 a 值, $\operatorname{erf}(a)$ 对应不同的渐近表达式^[3], 在本计算中由程序自动转移。当 $a \leq 0.1$, $V(a) \approx 1.0$, 为纯 Doppler 展宽, 相当于 $p \approx 2.66$ kPa 条件; 当 $a \geq 4.0$, 趋于纯碰撞展宽, 相当于 $p \approx 13.3$ kPa。在二者之间兼有两种展宽效应。

2 结果和讨论

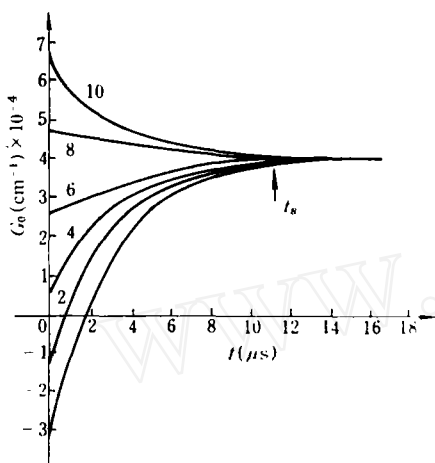
除初始压力 P_0 外保持其他物理参数不变, 观察 $t = 20 \mu\text{s}$ 时 T, P, u 的值(表 1), 从表 1 看出: (1) T, P, u 偏离初值都不很大; (2) T, u 的偏离值随压力增大而加大, 但压力基本不变。这是因为反应(1)和(2)是近共振交换过程, 释放出的热量很少。 O_2^+ 和 I^* 最有效猝灭剂碘分子浓度又很小, 碰撞弛豫反应释出的热量也相应很小。例如: $P_0 = 1.33$ kPa, $[\text{O}_2^+]/[\text{O}_2] = 1$, $[\text{I}^* + \text{I}]/[\text{O}_2] = 0.011$, $[\text{I}^*]/[\text{I}] = 1$ 条件下, 在一次计算步长时间($\sim 5 \times 10^{-9}$ s)内, $du/dt < 10^6$ (cm/s²), $dT/dt < 1 \times 10^5$ (K/s), $dP/dt \approx -13.3$ kPa/s。相应增量 $\Delta u < 5 \times 10^{-3}$ (cm/s), $\Delta T < 5 \times 10^{-4}$ K, $\Delta P < 0.665 \times 10^{-7}$ kPa。所以 T, P, u 发展到 $t = 20 \mu\text{s}$ 后, 偏离初值仍不大。另外, 随压力增大, 碰撞弛豫过程加快, 反应放出热量相应增加, 所以 T, P, u 偏离初值随压力增加略有增加。

Table 1

P_0 (kPa)	u (m/s)	T (K)	P (kPa)	P_0 (kPa)	u (m/s)	T (K)	P (kPa)
0.133	30.27	295.6	0.133	2.66	32.05	312.6	2.656
0.665	31.02	302.8	0.665	6.65	32.5	317.4	6.64
1.33	31.54	307.7	1.329	13.3	32.8	319.4	13.28

为计算方便起见, 引入 L 参量代表 $[\text{I}^*]/[\text{I}]$ 的某一比值, 以考察 $[\text{I}^*]/[\text{I}]$ 对增益系数的影响。结果表明, 对于固定运转条件, L 不同增益的时间历史不同, 见图 1。随时间推移, 对于一定离解度(即 $\text{DIA} = \text{常数}$), 不同 L 的增益曲线最后都趋于某一定值。从公式(III-1)可知, 当 $[\text{I}^*]_0 = [\text{I}]/2$, 增益为零。所以如果初始浓度 $[\text{I}^*]_0 \leq 1/2[\text{I}]$ 时, $t = 0$ 处增益 $g \leq 0$ (图 1 中 $L = 0, 2$); 当 $[\text{I}^*]_0 > [\text{I}]/2$ 时, $t = 0$ 处有正增益(图 1 中 $L = 4, 6$)。随 t 增大, g 逐渐上升, 最后趋于定值。这是因为反应(1)一开始就迅速进行, I^* 原子逐渐增多而 I 原子不断消耗, g 随之增大。

但 I^* 原子含量加大有利于反应(2)加速进行,最后和反应(1)达成平衡, $[I^*]$ 和 $[I]$ 就趋于该运转条件下的平衡浓度, g 也趋于定值。反之若 $[I^*] \gg [I]_0$, 如图 1 中 $L = 8, 10$ 。这时 $[I^*]$ 很大, 有利于反应(2)发展, 一开始反应(2)会超过反应(1), 迅速消耗 I^* 原子并生成 I 原子, 使 g 随 t 增加而下降, 最后反应(1), (2) 达成平衡, $[I^*]$ 和 $[I]$ 也达到该运转条件下的平衡浓度, 所以 $t = 0$ 时有最大增益。由于一定 T, P 条件下 $[I^*]$ 和 $[I]$ 的平衡浓度是固定的, 所以不同 $[I^*]_0/[I]_0$ 初始浓度比的所有 $g-t$ 曲线最后都汇合在一起。不过压力较小时, 需要较长时间才能达到该定值。设这个汇合时间为 t_s 。从图 2 看出, $P = 0.133 \text{ kPa}$, $t_s \sim 10 \mu\text{s}$; $P = 1.33 \text{ kPa}$, $t_s \sim 1.5 \mu\text{s}$; $P = 6.65 \text{ kPa}$, $t_s \sim 0.3 \mu\text{s}$ 。高压下的 t_s 小于低压的 t_s 值。如 $(t_s)_{P=6.65 \text{ kPa}} \ll (t_s)_{P=0.133 \text{ kPa}}$ 。因为提高压力加大了分子间碰撞机会, 反应会更快达到平衡。 $t < t_s$, 不同 L 的 $g-t$ 曲线有自己的历史, $t > t_s$, L 或 $[I^*]_0/[I]_0$ 的大小对增益没有影响, 因为这时所有 $[I^*]$ 和 $[I]$ 都维持在相同 T, P 条件下的平衡浓度、增益都相同。不同 T, P 运转条件, $[I^*]$ 和 $[I]$ 平衡浓度不同, 增益也不同。 t_s 在一定程度上也象征反应(1)和反应(2)达到平衡的时间。



$$\frac{([I^*] + [I])}{[O_2^*]} = 0.01$$

L	$[I^*]_0$	$[I]_0$	$[I^*]_0/[I]_0$
0	0	0.01	0
2	0.002	0.008	1/4
4	0.004	0.006	2/3
6	0.006	0.004	3/2
8	0.008	0.002	4
10	0.01	0	∞

Fig. 1 Effect of L on g

$P = 0.133 \text{ kPa}$, $T_0 = 293 \text{ K}$, $u_0 = 30 \text{ m/s}$;

$O_2 : O_2^* : (I^* + I) : RI : N_2 = 1 : 1 : 0.01 : 1.99 : 2$

图 2 和图 3 反映了增益对压力的关系。压力较低时, 增益随压力增加而增加。如 $P = 0.133 \text{ kPa}$, $g \approx 2 \times 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$, $P = 1.33 \text{ kPa}$, $g \approx 2 \times 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ 。压力继续上升, 增益增加的趋势越来越小, 当 $P \rightarrow 6.65 \text{ kPa}$, 曲线开始呈饱和的状态。 $p = 13.3 \text{ kPa}$, 增益已有下降趋势。这是因为压力上升, 碰撞消激发起重要作用, 抑制增益进一步提高。一定 DIA 条件下, 用提高压力的办法提高增益有一定限制, 这种限制视运转条件而有所不同。

$([I^*] + [I])$ 随 DIA 增加而增加。它在增益介质中的含量是很重要的。图 4 和图 5 说明了增益随离解度增加线性增长的趋势。当压力超过 1.33 kPa , 增益超过 10^{-3} cm^{-1} , ($DIA > 0.005$); 压力超过 2.66 kPa , $DIA \geq 0.02$, 增益可能突破 10^{-2} cm^{-1} 。想办法提高 RI 的离解度是至关重要的。图 5 显示了不同时刻增益的 DIA 关系。增益随时间的增加会下降(由于弛豫)。DIA 增加, G 下降更快一些。反映了碘和碘原子对 I^* 的快速弛豫作用。

图 6 表明 $[O_2^*]/[O_2]$ 比值对增益的影响。 $[O_2^*]/[O_2] < 0.176$, 增益为负; $[O_2^*]/[O_2]$ 从 ~ 0.2 提高到 1, 增益线性上升; $[O_2^*]/[O_2] > 1$, 增加的趋势渐缓; 继续增加, 曲线越来越平直。说

明把 $[\text{O}_2^*]/[\text{O}_2]$ 提高到超过 1 是必要的,但无需追求过高的 $[\text{O}_2^*]/[\text{O}_2]$ 比值。

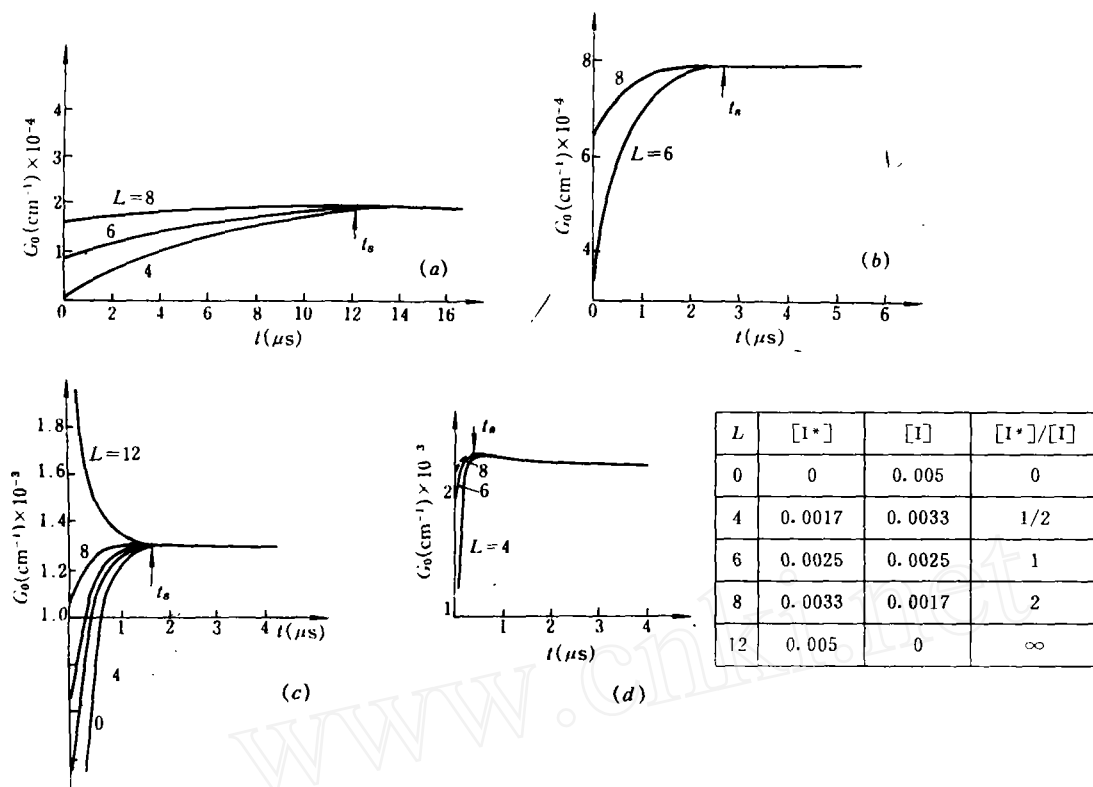


Fig. 2 g versus L at different pressure

(a) $P = 0.133 \text{ kPa}$; (b) $P = 0.665 \text{ kPa}$; (c) $P = 1.33 \text{ kPa}$; (d) $P = 6.65 \text{ kPa}$

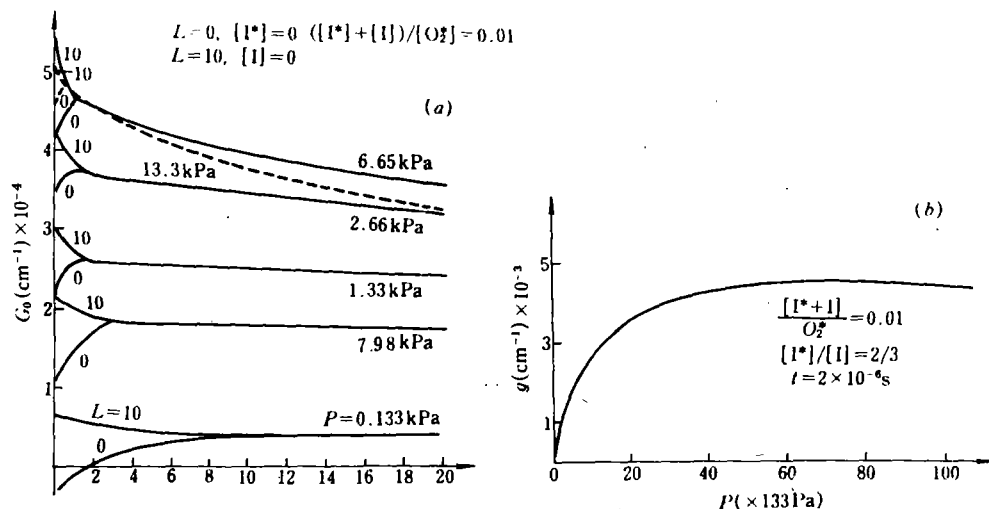
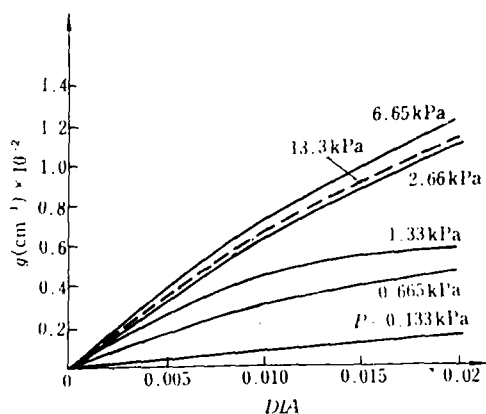
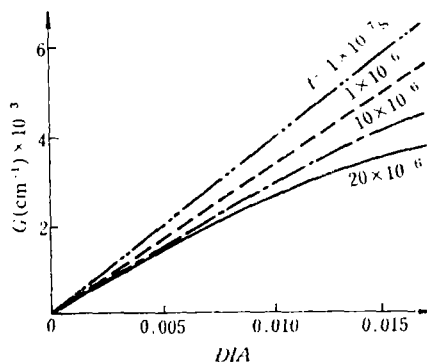
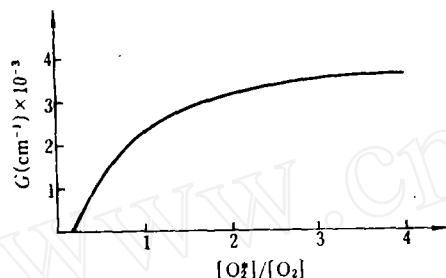


Fig. 3 The relationship between gain and pressure

(a) Gain distribution along t at different pressure; (b) Gain versus pressure

Fig. 4 The relation of G -DIA- P Fig. 5 g versus DIA at different time

$(O_2^+ + O_2) : RI : N_2 = 2 : 2 : 5$;
 $[O_2^+]/[O_2] = 1/2, [I^+]/[I] = 2.0, P = 1.33 \text{ kPa}$

Fig. 6 g versus $[O_2^+]/[O_2]$

$(O_2^+ + O_2) : RI : N_2 = 2 : 2 : 6$;
 $P = 1.33 \text{ kPa}; t = 2 \times 10^{-6} \text{ s}$

感谢中国科学院大连化物所的支持和庄琦、冯浩以及张荣耀诸位教授对本课题的有益帮助。

参 考 文 献

- 1 N. G. Basov *et al.*, *Sov. J. Quant. Electr.*, **17**(5), 588(1987)
- 2 张荣耀 *et al.*, *中国激光*, **15**(8), 455(1988)
- 3 S. S. Penner, *Quantitative molecular spectroscopy and gas emissivities*, 26; G. A. Bird, *Molecular gas dynamics*, 215
- 4 庄琦 *et al.*, *中国激光*, **14**(6), 346(1987); 冯浩 *et al.*, *中国激光*, **14**(11), 646(1987); A. I. *et al.*, *Sov. J. Quant. Electr.*, **12**(4), 399(1982); G. E. Busch *et al.*, *IEEE J. Quant. Electr.*, **QE-17**(96), 1128 (1981)